



19 BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENTAMT

12 Offenlegungsschrift
10 DE 196 24 887 A 1

21 Aktenzeichen: 196 24 887.6
22 Anmeldetag: 21. 6. 98
43 Offenlegungstag: 2. 1. 97

61 Int. Cl.⁸:
H 01 M 8/10
H 01 M 4/88
H 01 M 4/90
C 25 B 1/08
C 25 B 9/00
C 25 B 11/02
C 25 B 11/04

DE 196 24 887 A 1

30 Innere Priorität: 32 33 31
21.08.95 DE 195225086

71 Anmelder:
Fraunhofer-Gesellschaft zur Förderung der
angewandten Forschung e.V., 80636 München, DE

74 Vertreter:
PFENNING MEINIG & PARTNER, 80338 München

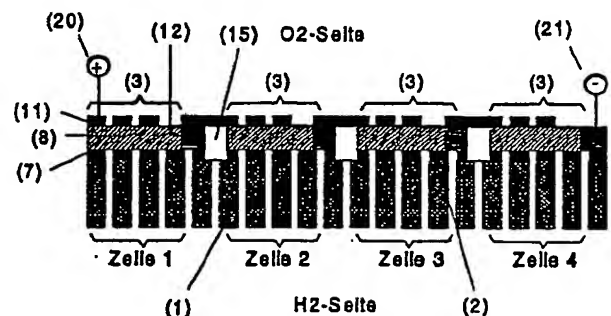
72 Erfinder:
Ledjeff, Konstantin, Dr., 79379 Müllheim, DE; Nolte,
Roland, Dr., 79211 Denzlingen, DE

BEST AVAILABLE COPY

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

64 Elektrochemisches Festelektrolyt-Zellsystem

57 Die Erfindung betrifft ein elektrochemisches Festelektrolyt-Zellsystem, bestehend aus einem flächigen gasdurchlässigen nichtleitenden Tragkörper (1), bei dem auf einer Oberfläche (2) mindestens ein Zellbereich (3), bestehend aus einer ersten porösen, elektrisch leitfähigen Elektroden-schicht (7), einer protonenleitenden Membranschicht (8) und einer zweiten porösen, elektronisch leitfähigen Elektroden-schicht (11) übereinander, mittels Schichttechnik, aufgebracht ist.



BEST AVAILABLE COPY

DE 196 24 887 A 1

Die Erfindung betrifft ein elektrochemisches Festelektrolyt-Zellsystem, bei dem mittels Schichttechnik auf einer Oberfläche eines gasdurchlässigen Tragkörpers eine erste poröse elektrisch leitfähige Elektroden-schicht, eine protonenleitende Membranschicht und eine zweite poröse elektronisch leitfähige Elektroden-schicht aufgebracht ist.

Elektrochemische Zellen sind beispielsweise in Form der Brennstoffzelle oder der Elektrolysezelle bekannt. Brennstoffzellen z. B. wandeln chemische Energie direkt in elektrische Energie mit hohen Wirkungsgraden (50–60%) um. Sie bestehen vereinfacht aus zwei Elektroden und einem dazwischenliegenden Elektrolyten. An die Elektroden werden laufend die chemischen Energieträger herangeführt und elektrochemisch umgesetzt. Als typisches Beispiel sei die Wasserstoff-Sauerstoff-Brennstoffzelle genannt, wobei die eine Elektrode mit Wasserstoff und die andere Elektrode mit Sauerstoff versorgt wird. An den katalytisch wirksamen Elektroden laufen dann freiwillig die folgenden elektrochemischen Reaktionen ab.

Wasserstoff-Elektrode (Anode): $\text{H}_2 \rightarrow 2\text{H}^+ + 2\text{e}^-$

Sauerstoff-Elektrode (Kathode): $0.5\text{O}_2 + 2\text{H}^+ + 2\text{e}^- \rightarrow \text{H}_2\text{O}$.

Zwischen beiden Elektroden befindet sich dabei ein protonenleitender Elektrolyt, bei dem es sich im Falle einer PEN-Brennstoffzelle (Polymer-Elektrolyt-Membran-Brennstoffzelle) um eine protonenleitfähige Polymermembran handelt. An den beiden Elektroden kann dann eine Spannung abgegriffen werden, die sich je nach elektrischer Belastung typischerweise im Bereich zwischen 0,5 und 1 V bewegt.

Um für praktische Anwendungen höhere Ausgangsspannung zu realisieren, werden in der sogenannten bipolaren Stapelbauweise eine Vielzahl von Zellen mittels elektronisch leitfähiger bipolarer Platten hintereinander in Reihe verschaltet. Die Zellen besitzen dabei in allen Richtungen makroskopische Ausdehnungen und werden aus einer Vielzahl von Komponenten hergestellt, die im Zellstapel dann mittels Druck zusammengepreßt werden. Ein derartiger Stapel ist z. B. in der Patentschrift US 4.175,165 "Fuel Cell System utilizing ion exchange membranes and bipolar plates", Inventor: Otto S. Adlehart, beschrieben.

Herzstück eines solchen Zellstapels sind die Membranen, die typischerweise auf beiden Seiten mit elektrochemisch aktivem Katalysatormaterial beschichtet sind. Die Membranflächen bewegen sich üblicherweise zwischen 1 und 1500 cm², die Membrandicke zwischen 30 und 200 µm. Auf die beiden katalysatorbeschichteten Flächen der Membran drücken gasdurchlässige und elektronisch leitfähige Stromverteiler, die für eine gute elektronische Querleitfähigkeit und eine homogene Gasversorgung der Membran sorgen. Die Stromverteiler sind separate Strukturen mit einer Dicke von z. B. 200–500 µm. Es schließen sich auf beiden Seiten die elektronisch leitfähigen bipolaren Platten an, an denen die Spannung abgegriffen werden kann und die interne Kanäle für die Gaszufuhr der jeweiligen Elektrode enthalten. Sie haben Dicken im Bereich einiger Millimeter bis Zentimeter. Zur Sicherung der Gasdichtigkeit des Zellstapels ist zwischen Membranseite und bipolarer Platte jeweils eine Dichtung vorgesehen. Diese ganze Anordnung ist beispielsweise mittels Verschraubung zu-

sammenzupressen, um zum einen elektrische Kontaktierung der Membran und zum anderen die Gasdichtigkeit zu erreichen.

Im Zuge eines möglichst geringen Volumens des Zellstapels und möglichst geringer elektrischer Verluste wird versucht, die oben beschriebene Anordnung so klein und dünn wie möglich auszuführen. Prinzipbedingt ist eine solche Miniaturisierung mit einem Konzept nach dem obigen Stand der Technik nur sehr begrenzt möglich: Die gesamte Anordnung muß zusammengepreßt werden, so daß die einzelnen Komponenten (Membran, Platten etc.) starken mechanischen und vor allem nicht homogen wirkenden Beanspruchungen standhalten müssen. Eine drastische Reduzierung der Dicke der beteiligten Komponenten scheidet damit aus, da sehr dünne Komponenten unweigerlich brechen oder reißen würden. Auch eine Miniaturisierung der Zellfläche in den Quadratmillimeterbereich, um beispielsweise hohe Spannungen bei nur geringen Strömen zu erhalten, stößt bei diesem Konzept an die Grenzen der Machbarkeit. Ein mechanischer Zusammenbau von Hunderten kleinster Einzelteile und deren Verschraubung ist unter praktischen Gesichtspunkten nicht durchführbar.

Außerdem ist eine Brennstoffzellenanordnung in der DE 39 07 485 A1 beschrieben. Dabei handelt es sich um eine sogenannte SOFC (Solid Oxid Fuel Cell) Anordnung. Dieser Brennstoffzellentyp wird in einem Temperaturbereich zwischen 800 und 1000°C betrieben und aus diesem Grunde müssen entsprechend temperaturbeständige anorganische Materialien eingesetzt werden. So sind die Elektrolyten ionenleitende Oxidkeramiken und der Leitmechanismus erfolgt nahezu ausschließlich über Sauerstoffionen. Neben dem Elektrolyten ist das auch nach der DE 39 07 485 verwendete Trägermaterial ein poröser keramischer Werkstoff, wie z. B. Magnesium-Aluminiumspinel (MgAl_2O_4) oder Zirkoniumoxid. Weiter ist neben den hohen Anforderungen an die verwendeten Materialien nachteilig, daß die vorbekannte Brennstoffzellenanordnung auch entsprechend große Abmessungen aufweisen muß, so daß der Einsatz nicht in beliebigen Formen und an beliebigen Orten durchgeführt werden kann.

Keramische Materialien sind neben den zweifelsfrei vorhandenen Vorteilen auch mit dem Nachteil, daß sie sehr spröde sind, behaftet. Eine einmal vorgegebene Form kann nicht mehr verändert werden und es sind dadurch nur starre Strukturen einhaltbar. Eine nachträgliche Veränderung der Form oder Geometrie oder eine Anpassung an verschiedene Einsatzortmodifikationen ist nachträglich nicht mehr gegeben.

In der DE 43 29 819 A1 ist weiter eine sogenannte Streifenmembran beschrieben, die als elektrochemische Zelle mit mindestens einer einen Kernbereich bildenden Streifenmembran, auf der jeweils beidseitig polymere Festelektrolyten als Elektroden-schicht aufgebracht sind und bei der mehrere Einzelzellen in Reihe geschaltet sind, ausgebildet ist. Eine solche Streifenmembran kann dann in Brennstoffzellen verwendet werden. Hierbei muß aber die geringe Festigkeit berücksichtigt werden und eine entsprechende Gehäuseaufnahme durchgeführt werden. Weiter ist es bei dieser Lösung nachteilig, daß für die Erzielung hoher Spannungen eine entsprechend große Anzahl von Einzelzellen in Reihe geschaltet werden muß, die einen entsprechend großen flächigen Raumbedarf erfordern. Dadurch kann ein Einsatz nicht variabel an die verschiedensten Einsatzorte angepaßt werden.

Aus der DE 40 33 284 A1 ist eine weitere Anordnung von Brennstoffzellen auf der Basis eines Hochtemperatur-Feststoffelektrolyten bekannt. Diese gehört ebenfalls zu der bereits erwähnten Gruppe der SOFC-Brennstoffzellen, mit den bereits bei der Beschreibung der Brennstoffzellenanordnung nach DE 39 07 485 genannten Nachteilen.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung war es daher, ein neues elektrochemisches Festelektrolyt-Zellsystem vorzuschlagen, mit dem eine Miniaturisierung eines Zellstapels in der Fläche und/oder in der Dicke der Komponenten möglich sein soll.

Die Aufgabe wird in Bezug auf das Zellsystem durch die kennzeichnenden Merkmale des Anspruchs 1, verfahrensgemäß durch die kennzeichnenden Merkmale des Anspruchs 21 und verwendungsgemäß durch die kennzeichnenden Merkmale der Ansprüche 24 und 25 gelöst. Die Unteransprüche zeigen vorteilhafte Ausgestaltungen auf.

Erfindungsgemäß wird somit vorgeschlagen, auf einen flächigen, gasdurchlässigen, nicht leitenden Tragkörper ein Brennstoffzellensystem in Schichttechnik aufzubringen. Dadurch ist die Zelle analog den elektrisch integrierten Schaltungen als Chip herstell- und einsetzbar.

Erfindungswesentlich beim Anmeldungsgegenstand ist, daß ein flächiger, gasdurchlässiger, nicht leitender flexibler Tragkörper eingesetzt wird, auf dessen Oberfläche dann in Schichttechnik die Zelle aufgebracht ist. Die mittels Schichttechnik aufgebrachte Zelle ist dabei nur einseitig, d. h. nur auf einer Oberfläche angeordnet, so daß es dadurch in Verbindung mit dem gasdurchlässigen Tragkörper möglich wird, einen ersten, an der Brennzellenreaktion beteiligten Partner, auf der dem Zellbereich gegenüberliegenden Seite durch den gasdurchlässigen Tragkörper der Zelle zuzuleiten und den zweiten Reaktionspartner direkt auf die Oberfläche der Zelle zu führen.

Besonders hervorzuheben beim erfindungsgemäßen Zellsystem ist, daß es durch diesen Aufbau möglich wird, auf einem Tragkörper mehrere Zellbereiche anzuordnen und elektrisch zu verschalten. Dadurch ist eine Anordnung realisierbar, die der aus dem Stand der Technik bekannten Stapelbauweise entspricht.

Grundsätzlich lassen sich auf diese Weise analog den integrierten Schaltungen mindestens bis zu 1 000 000 Zellbereiche anordnen.

Erfindungsgemäß wird dabei unter einem Zellbereich ein isolierter Aufbau einer Zelle verstanden, jeweils bestehend aus einer ersten porösen, flexiblen, elektrisch leitfähigen Elektrodenschicht, einer protonenleitenden Membranschicht und einer zweiten porösen, flexiblen, elektronisch leitfähigen Elektrodenschicht. Diese einzelnen Zellbereiche können jeweils durch entsprechende Schichttechnologie (z. B. Maskentechnik) aufgebracht, und mittels geeigneter, elektrischer Kontakte verschaltet werden. Durch die erfindungsgemäß eingesetzte Schichttechnik eröffnen sich somit zahlreiche Möglichkeiten der Hintereinanderschaltung der einzelnen Zellbereiche. So können zum einen mehrere der vorstehend beschriebenen Zellbereiche, bevorzugt 2—10 000, hintereinander in Reihe verschaltet werden; so daß eine eindimensionale Zellanordnung entsteht. Mit dem erfindungsgemäßen Zellsystem ist aber auch jede beliebige Anordnung von hintereinander geschalteten Zellen möglich. Derartige zweidimensionale Anordnungen können so ausgestaltet sein, daß mehrere Zellreihen hintereinander in beliebigen Formen auf dem Tragkörper

angeordnet sind, oder auch, daß mehrere einzelne Zellreihen, bevorzugt 2—10 000, gebildet werden, die dann untereinander parallel verschaltet sind (redundante Anordnung).

Grundlage des erfindungsgemäßen Zellsystems ist somit der gasdurchlässige, flächige, nichtleitende, flexible Tragkörper. Dieser Tragkörper dient als mechanisches Grundgerüst für alle folgenden, aufzubringenden Schichten. Gleichzeitig erfolgt die Brennstoffzufuhr für die eine Elektrode ebenfalls durch diesen Tragkörper. Da erfindungsgemäß auch mehrere Zellen nebeneinander auf dem Tragkörper aufgebracht sein können, muß der Tragkörper nicht leitfähig sein, da sonst die einzelnen Zellen über den Tragkörper kurzgeschlossen würden. Der erfindungsgemäß eingesetzte Tragkörper hat eine Dicke von 10 µm bis 10 mm und eine Fläche von 1 mm² bis 1 m². Die Dimensionierung des Tragkörpers richtet sich dabei nach dem Anwendungsfall, d. h. ob eine oder mehrere Zellen auf der Oberfläche aufgebracht sind. Bevorzugterweise ist der Tragkörper eine nicht leitfähige, gasdurchlässige, flächige Membran. Die Materialien für den Tragkörper sind typischerweise polymere Träger aus z. B. Polysulfon. Derartige poröse Membranen können dabei symmetrisch, d. h. gleiche Membranstruktur über den gesamten Membranquerschnitt, oder asymmetrisch, d. h. Änderungen der Membranstruktur über den Membranquerschnitt, aufweisen. Auch Composit-Membranen sind möglich. Ein Überblick über erfindungsgemäß einsetzbare Materialien für den Tragkörper sind z. B. aus "Membranen", Prof. Dr. Eberhard Staudé, aus Ullmanns Enzyklopädie der technischen Chemie, 4. Auflage, 1978, Bd. 16, Seite 515 bis 535, zu entnehmen.

Im Gegensatz zu den SOFC-Brennstoffzellen handelt es sich bei den erfindungsgemäß ausgebildeten um PEMFC-Brennstoffzellen (Polymer electrolyt membran fuel cell), die typischerweise in einem Temperaturbereich zwischen 80 und 100°C arbeiten und die Ionenleitung nicht über die Sauerstoffionen, sondern über protonenleitende Membranen, die in der Regel aus protonenleitendem Polymermaterial bestehen, erfolgt. Da das erfindungsgemäß ausgebildete Festelektrolyt-Zellsystem aus Polymermaterialien besteht, sind sie für den Einsatz in PEMFC-Brennstoffzellen geeignet und insbesondere sehr leicht und flexibel ausgebildet, was dadurch entsprechende flexible Strukturen ermöglicht. Mit den Polymermaterialien können günstig poröse, gasdurchlässige Folien hergestellt werden, wobei das in der Membrantechnik bekannte Phaseninversionsverfahren angewendet werden kann. Dabei wird eine Polymerlösung in ein Zellbad getaucht und eine Entmischung der Lösung in eine polymerreiche und in eine polymerarme Phase erfolgt. Nachdem die Membran getrocknet worden ist, kann eine gasdurchlässige, poröse Struktur erhalten werden. Alle anderen Schichten des erfindungsgemäßen Zellsystems (ionenleitende Kunststoffolie oder leitfähige Strukturen), können dann auf den so erhaltenen porösen Polymerträger, der ebenfalls flexibel ist, aufgebracht werden. Dabei wird ein vollständig flexibler Schichtaufbau erreicht. Das so hergestellte Zellsystem hat dann die Form einer flexiblen Folie, die in verschiedenster Form weiter eingesetzt werden kann. So können beispielsweise Wickelmodule hergestellt werden, wobei der vorab beschriebene Folienaufbau des erfindungsgemäßen Zellsystems mit einer zweiten nicht funktionalen, nicht leitenden, dünnen flexiblen Kunststoffolie übereinander gelegt und entsprechend aufgewickelt wird. Dabei sollten zwischen der letztge-

nannten Kunststoffolie und der "Brennstoffzellenfolie" Gasräume ausgebildet werden, so daß die Brennstoffzellenfolie einseitig mit Wasserstoff und auf der anderen Seite mit Sauerstoff oder Luft in Kontakt gebracht werden kann, so daß eine funktionsfähige Brennstoffzelle mit durch die Möglichkeit der Reihenschaltung erreichbarer hoher Ausgangsspannung gebildet wird. Wird beispielsweise das Zellsystem als Wickelmodul ausgebildet, so kann durch die Verwendung der Kunststoffausgangsmaterialien die Abdichtung der Ränder an den beiden Stirnflächen des Wickelmoduls durch einfaches Verkleben oder Verschweißen der Kunststoffe mit einem geeigneten Verschuß (Deckel) erreicht werden. Die Verschlüsse sind aus einem stabilen, nicht leitendem gasundurchlässigen Material.

Mit dem erfindungsgemäß ausgebildeten Zellsystem können neben der Verwendung als Wickelmodul die verschiedensten Strukturen und Formen ausgebildet werden, so daß es möglich wird, auf relativ kleinem Raum Brennstoffzellen zur Verfügung zu stellen, die gewüschtermaßen eine hohe Ausgangsspannung liefern können.

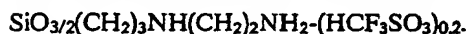
Üblicherweise weist die Oberfläche des Tragkörpers eine Fläche von 1 cm² bis 1000 cm² auf.

Ein Überblick hierüber ist z. B. aus "Membranen", Prof. Dr. Eberhard Staudé, aus Ullmanns Enzyklopädie der technischen Chemie, 4. Auflage, 1978, Bd. 16, Seite 515—535, zu entnehmen.

Die auf dem vorstehend beschriebenen Tragkörper mittels Schichttechnik abgeschiedenen Elektroden-schichten weisen typischerweise eine Dicke 10 nm bis 100 µm auf. Als Materialien hierfür kommen alle, an und für sich bereits aus dem Stand der Technik bekannten Elektrodenmaterialien in Frage.

Voraussetzung für die Elektroden-schichten ist, daß die elektronisch leitfähig und katalytisch aktiv sind. In der Regel sind für den Ablauf der elektrochemischen Teilreaktionen geeignete Katalysatoren notwendig, um hohe Übergangsspannungen zu vermeiden. So wird für eine Wasserstoff-Sauerstoff-Brennstoffzelle typischerweise Platin als Elektrodenmaterial-Katalysator verwendet. Andere Beispiele für Elektrodenmaterialien sind platinisierte Kohlen oder Iridium. Weiterhin können Zusatzstoffe wie z. B. Hydrophobierungsmittel enthalten sein.

Bei der ebenfalls mittels Schichttechnik auf der ersten Elektroden-schicht abgeschiedenen Membranschicht ist wichtig, daß diese protonenleitfähig ist, um den ionischen Ladungstransport zwischen den beiden Elektroden zu gewährleisten. Typischerweise besitzen Polymere, welche Sulfonsäure-, Carbonsäure- oder Phosphonsäuregruppen enthalten, in Gegenwart von Wasser die Eigenschaft der Protonenleitfähigkeit. Beispiele sind sulfonierte Polysulfone oder sulfonierte Polyethersulfone. Eine andere Möglichkeit ist die organisch-anorganische Polymerklasse der Ormolyte (ORganically MODified ceramics elektroLYTES), wie beispielsweise Aminosile, Poly(benzylsulfonsäure)siloxane oder Sulfonamidosile, welche alle über Sol-Gel-Prozesse hergestellt werden. Aminosile werden aus einer Lösung von aminiertem Organotrisiloxan, einer Säure HX und Wasser erhalten. Über einen Sol-Gel-Prozeß werden Materialien der allgemeinen Formel $\text{SiO}_{3/2} \cdot \text{R}(\text{HX})_x$, $0 \leq x \leq 0,5$ erhalten. Ein Beispiel für ein Aminosil ist



Auch anorganische Verbindungen können Protonen-

leitfähigkeit aufweisen, insbesondere bei höheren Temperaturen, Beispiele sind modifizierte Erdalkalicerate oder -zirkonate wie



Erfindungsgemäß wird gemäß einer bevorzugten Ausführungsform vorgeschlagen, mehrere der vorstehend beschriebenen Zellbereiche auf dem Tragkörper anzuordnen und elektronisch zu verschalten. Diese Ausführungsform ist besonders bevorzugt, da sich hier analog der aus dem Stand der Technik bekannten Stapelbauweise sehr hohe Ausgangsspannungen durch Hintereinanderschaltung der einzelnen Zellen realisieren lassen. Erfindungsgemäß wird dies dadurch erreicht, daß die elektrische Verschaltung über einen, die protonenleitenden Membranschichten von benachbarten Zellbereichen trennenden, nicht protonenleitenden, elektrischen Kontakt erfolgt. Wichtig ist, daß die Protonenleitung zwischen den einzelnen Membranen unterbrochen wird. Gleichzeitig muß dabei eine elektronische Leitfähigkeit von z. B. der Membranunterseite des ersten Zellbereiches zur Membranoberseite des zweiten Zellbereiches gewährleistet sein. Dies wird nun dadurch erreicht, daß ein elektrischer Kontakt die beiden Membranschichten, die stirnseitig aneinander grenzen, voneinander trennt und dabei jeweils mit der unteren Elektroden-schicht und mit der oberen Elektroden-schicht des benachbarten Zellbereiches in Kontakt steht. Der Kontakt kann dabei so ausgebildet sein, daß eine Elektrodenfläche zwischen den beiden Membranen hindurchgeführt wird und mit der, der ersten Elektrodenfläche gegenüberliegenden Elektrodenfläche, des nächsten Zellbereiches in Kontakt steht. Bevorzugt ist dabei dieser Kontakt so ausgebildet, daß er im Bereich der protonenleitenden Membran nicht porös und nicht katalytisch aktiv ist. Beispiele für solche Materialien sind Titan oder auch leitfähige Polymere. Die Erfindung sieht weiterhin vor, daß zusätzlich zum elektrischen Kontakt noch eine isolierende Schicht, d. h. nicht leitfähige Bereiche, die ebenfalls mittels Schichttechnik aufgebracht sein können, zwischen dem Kontakt und der Membran angeordnet sind. Diese nicht leitfähigen Bereiche, d. h. isolierenden Schichten, dürfen weder ionisch noch elektronisch leitfähig sein. Als Materialien kommen deshalb typischerweise Metalloxide wie Aluminiumoxid oder nicht leitfähige Polymere, wie beispielsweise Polysulfone zum Einsatz.

Zusätzlich zum vorstehend beschriebenen Zellaufbau ist es auch noch möglich, schmale Streifen oder Gitter von elektronisch leitfähigem Material auf die Elektrodenflächen aufzubringen. Dies führt zum einen zu einer Verbesserung der Querleitfähigkeit der Elektroden-schichten und zum anderen zu einer Verbesserung der Stabilisierung der mechanischen Eigenschaften. Diese Ausführungsform ist dann vorteilhaft, wenn es zu starken mechanischen Beanspruchungen der Elektrodenfläche kommt, was z. B. dann der Fall ist, wenn mit ionenleitenden Elektrolyten gearbeitet wird, da es hierdurch zu Volumenänderungen im Betrieb durch Wasseraufnahme und -abgabe kommen kann.

Das Aufbringen der Substanzen erfolgt durch typische Methoden der Schichttechnik, wie Sputtern, CVD-Prozesse, plasmaunterstützte CVD-Prozesse, Plasmapolymérisation, Sol-Gel-Technik, galvanisch oder beschichten aus Lösung oder aus Suspensionen mit Pulvern. So lassen sich Metallschichten über Sputter-Prozesse aufbringen, Metalloxide sind ebenfalls über reakti-

ves Sputtern zugänglich. Auch CVD-Prozesse, z. B. die Zersetzung von metallorganischen Ausgangsverbindungen, ermöglichen Metalloxidschichten, wobei sich plasmaunterstützte CVD-Beschichtungen bei temperatur-empfindlichen Substraten anbieten. So sind beispielsweise durch die Zersetzung von π Cyclopentadienyltrimethylplatin im Plasma dünne Platinschichten zugänglich. Auch organische Schichten sind beispielsweise durch Plasmapolymersation von Ethylen oder anderen Organika zugänglich. Der Einbau von Carboxylatgruppen bei der Plasmapolymersation ermöglicht die Herstellung von protonenleitenden Plasmapolymere. Ormolyte als Protonenleiter werden beispielsweise mittels Sol-Gel-Prozeß hergestellt, andere sulfonierte Polymere können als Lösung aufgebracht werden. So lösen sich sulfonierte Polysulfone in der Regel gut in Dimethylsulfid und können so in viskoser Form aufgebracht werden.

Geeignete Masken während des Abscheidenvorganges oder Abdeckung mit Photolacken ermöglichen die Aufbringung von geometrisch definierten Bereichen, wie sie für das integrierte Brennstoffzellensystem notwendig sind.

Da die integrierte Brennstoffzelle freitragend aufgebaut ist, ist eine einfache Kapselung in Kunststoffgehäusen möglich. Nach dem Aufbringen aller Schichten auf den Tragkörper wird das Schicht-Brennstoffzellensystem in entsprechende Kunststoffgehäuse eingeschweißt oder eingegossen.

Wie vorstehend beschrieben, ist es somit möglich, die Brennstoffzellen in ein entsprechendes Kunststoffgehäuse einzuschweißen oder einzugießen. Diese Einbauweise erlaubt es auch, wenn eine Kühlung der Zelle notwendig ist, dies durch Aufbringen von Kühlrippen zu ermöglichen.

Das vorstehend beschriebene, erfindungsgemäße Konzept für elektrochemische Festelektrolyt-Zellsysteme ist einerseits dafür geeignet, z. B. Wasserstoff oder Methanol zu verstromen, ebenso für Wasserelektrolysezellen.

Weitere Merkmale, Einzelheiten und Vorzüge der Erfindung ergeben sich aus der folgenden Beschreibung dreier Ausführungsformen, sowie anhand der Zeichnungen. Hierbei zeigen:

Fig. 1 den Querschnitt durch den schematischen Aufbau eines erfindungsgemäßen Zellsystems mit einer zusätzlichen isolierenden Schicht;

Fig. 2 den Aufbau analog Fig. 1, jedoch mit einer isolierenden Schicht, die nur teilweise in die Membran hineinragt im Querschnitt;

Fig. 3 einen erfindungsgemäßen Aufbau analog Fig. 1, jedoch hier ausschließlich mit einem elektrischen Kontakt;

Fig. 4 die eindimensionale Anordnung von vier Einzelzellen hintereinander in der Draufsicht;

Fig. 5 die zweidimensionale Anordnung von mehreren Zellreihen hintereinander in der Draufsicht;

Fig. 6a in Seitenansicht und Querschnitt den Einbau eines erfindungsgemäßen Zellsystems in ein Gehäuse, und

Fig. 6b in der Frontansicht;

Fig. 7a eine weitere Ausführungsform betreffend den Einbau des Zellsystems in ein Gehäuse, jedoch hier mit einer integrierten Gasversorgung;

Fig. 7b diese Anordnung in der Frontansicht.

Fig. 8a den Einbau mehrerer Zellsysteme in ein Gehäuse, wiederum im Querschnitt,

Fig. 9 die Integration einer Wasserkühlung in ein Ge-

häuse,

Fig. 10 einen erfindungsgemäßen Aufbau in Form eines Wickelmoduls im Querschnitt,

Fig. 11 ein weiteres Ausführungsbeispiel unter zusätzlicher Verwendung von gasundurchlässigen, nicht leitenden Folien und

Fig. 12 eine Anordnung, bei der das in Fig. 11 gezeigte Ausführungsbeispiel auf einen Körper gewickelt ist.

Fig. 1 zeigt im Querschnitt schematisch den Aufbau eines erfindungsgemäßen Zellsystems am Beispiel einer Brennstoffzelle.

In der Ausführungsform nach Fig. 1 sind vier Einzelzellen (Zelle 1—4) hintereinander in Reihe verschaltet. Die Zelle 1 wird dabei durch den Zellbereich 3 und einem diesem Bereich 3 zugerechneten Teil des Tragkörpers gebildet. Grundlage des erfindungsgemäßen Zellsystems ist der gasdurchlässige, flexible Tragkörper 1. Der gasdurchlässige Tragkörper 1 ist in Fig. 1 wie in den folgenden Figuren nur der besseren Übersichtlichkeit wegen in Form eines gelochten Tragkörpers dargestellt. Die Erfindung schließt jedoch alle Varianten eines Tragkörpers mit ein, sofern diese gasdurchlässig sind. Der Tragkörper kann demnach selbst aus porösem Material sein, oder aus nichtporösem Material sein und entsprechende Durchbrechungen für den Gaszufluß aufweisen. Auch ist ein Tragkörper der ansonsten aus einem geschlossenen Material gefertigt ist, jedoch entsprechende Durchbrechungen für den Gasfluß aufweist, einsetzbar. Die Dimensionierung des Tragkörpers, d. h. die Dicke und die Oberfläche, wird je nach Einsatzbedingungen und angestrebten Ausgangsspannungen ausgewählt. Die Dicke liegt im Bereich von 10 μ m bis 10 mm, die Oberfläche im Bereich von 1 mm² bis 1 m². Zur Herstellung des erfindungsgemäßen Zellsystems wird nun auf den gasdurchlässigen, flexiblen Tragkörper 1 in einem ersten Schritt auf dessen Oberfläche 2 in bestimmten Abständen mittels Schichttechnik eine ebenfalls flexible isolierende Schicht 15 aus nicht leitfähigem Material aufgebracht. Dieses nicht leitfähige Material dient zur Isolierung der dann entstehenden Zellbereiche 3. Die Dicke der Isolierung 15 liegt dabei im Bereich von 10 nm bis 1 mm. In der Ausführungsform nach Fig. 1 existieren somit drei auf dem Tragkörper 1 aufgebrachte, isolierende Schichten 15. Die Höhe der Schicht wird dabei so gewählt, daß die Oberkante mit der dann herzustellenden Membranschicht 8 nahezu bundig verläuft. Im nun folgenden Schritt erfolgt die Beschichtung des gasdurchlässigen Tragkörpers 1 mit elektronisch leitfähigem, flexiblen Material zur Herstellung der ersten Elektroden-schicht 7. An dieser Elektroden-schicht 7 laufen dann die elektronischen Teilreaktionen z. B. Wasserstoffoxidation ab. Diese Schicht (erste Elektrode) darf nicht dicht sein, sondern muß ebenso wie der Tragkörper 1 eine gewisse Porosität aufweisen. Im folgenden Schritt werden dann direkt neben der isolierenden Schicht 15 und auf die erste Elektroden-schicht 7 zusätzlich kleine, elektronisch leitfähige Bezirke aufgebracht, die den elektrischen Kontakt 12 darstellen. In den nun entstandenen Vertiefungen zwischen der isolierenden Schicht 15 und dem leitfähigen Kontakt 12 wird eine flexible protonenleitende Schicht aufgebracht. Diese protonenleitende Schicht bildet dann die Membranschicht 8. Die Membranschicht 8 steht auf der Unterseite in Kontakt mit dem leitfähigen Material der Elektroden-schicht 7. Anschließend erfolgt dann eine Beschichtung wiederum mit einem elektronisch leitfähigen flexiblen Material zur Herstellung der zweiten Elektroden-schicht 11, an der dann die andere elektrochemische

Teilreaktion abläuft (zweite Elektrode).

Im Falle des vorstehend beschriebenen Beispiels einer Wasserstoff-Sauerstoff-Brennstoffzelle findet hier dann die Sauerstoffreduktion statt. Diese Schicht muß so beschaffen sein, daß ein Dreiphasenkontakt zwischen dem zugeführten Gas, zweiter Elektrode 11 und Membranschicht 8 möglich ist, d. h. es darf sich nicht um eine dichte Schicht handeln. Desweiteren muß die Schicht 11 so aufgebracht werden, daß eine elektronisch leitfähige Verbindung zwischen der unteren Elektrode 7 einer Zelle und der oberen Elektrode 11 der folgenden Zelle mit Hilfe des elektrischen Kontaktes 12 zustande kommt. Damit wird eine interne elektrische Reihenverschaltung der einzelnen Zellen 1 bis 4 realisiert und an der ersten oberen Elektrode mit dem Anschluß 20 und der letzten unteren Elektrode mit dem Anschluß 21 kann die Summe aller Zellenspannungen abgegriffen werden.

Fig. 2 zeigt nun eine weitere Ausführungsform eines erfindungsgemäßen Zellsystems. Der Aufbau entspricht im wesentlichen dem Aufbau nach Fig. 1, jedoch ist nach Fig. 2 die Verschaltung mittels des elektrischen Kontaktes anders realisiert. Die Verschaltung nach Fig. 2 erfolgt hier durch einen elektrischen Kontakt 13, der hierbei so ausgebildet ist, daß er direkt die obere Elektrodenschicht 7 mit der unteren Elektrodenschicht 7 verbindet. Der elektrische Kontakt 13 ist hierbei durchgängig aus einem dichten Material gebildet. In der Ausführungsform nach Fig. 1 war das dichte Material lediglich im Bereich der protonenleitenden Membranschicht angeordnet. Eine solche Anordnung kommt z. B. dann zum Tragen, wenn die elektrischen Kontakte (13) erst im letzten Herstellungsschritt eingefügt werden, indem z. B. entsprechende leitfähige Strukturen von oben mit Druck in das Zellsystem eingefügt werden. In Abwandlung vom Ausführungsbeispiel nach Fig. 1 ist hier die isolierende Schicht 16 nicht so ausgebildet, daß sie über die gesamte Dicke der Membranschicht 9 führt, sondern nur teilweise. Auch mit dieser Ausführungsform ist eine erfindungsgemäße Reihenschaltung des Zellbereichs 4 realisierbar. Fig. 3 zeigt nun eine Ausführungsform bei der gänzlich auf die isolierenden Schichten verzichtet wird. Bei dieser Ausführungsform wird die Membranschicht 10 so ausgebildet, daß sie bis auf den Tragkörper 1 im Bereich des elektrischen Kontaktes 14 geführt ist. Dadurch läßt sich ebenfalls eine Reihenschaltung des Zellbereichs 5 realisieren.

Wesentlich bei allen Ausführungsformen nach Fig. 1 bis 3 ist jeweils, daß die einzelnen Zellen 3, 4, 5 hintereinander in Reihe verschaltet sind, wobei der elektrische Kontakt 12, 13, 14 die beiden benachbarten Membranschichten trennen muß.

Fig. 4 zeigt nun den erfindungsgemäßen Zellaufbau nach Fig. 1 in der Draufsicht. Zu erkennen sind die hintereinander angeordneten Zellen 1 bis 4, deren Einzelspannungen sich gemäß der Serienschaltung nach Fig. 4 zu einer Gesamtspannung addieren, die an den Anschlüssen 20 und 21 abgreifbar sind. Diese Anordnung der Einzelzellen ist eine Anordnung in einer Richtung.

Fig. 5 zeigt nun eine Ausführungsform bei der Einzelzellen so angeordnet sind, daß sie sich in zwei Richtungen ausdehnen, was mit Hilfe der Schichttechnik problemlos möglich ist. Fig. 5 zeigt dies am Beispiel von 16 einzelnen Zellen, wobei in jeder Achsenrichtung jeweils 4 Zellen (Zellbereich 1—4) angeordnet sind. Alle Zellen sind auf dem Tragkörper 1 aufgebracht und gemäß dem in Fig. 1 beschriebenen Prinzip in Reihe verschaltet, so

daß die 16fache Ausgangsspannung gegenüber einer Einzelzelle zur Verfügung steht. Die Spannung kann dann an den Anschlüssen 20 und 21 abgegriffen werden. Bei der Ausführungsform nach Fig. 5 sind die Tragkörperbereiche, die nicht von der Zellenanordnung bedeckt werden, mit einer nicht leitfähigen Substanz 40 so beschichtet, daß kein Gasdurchtritt von der Unter- zur Oberseite stattfindet. Die Reihenfolge und Art der elektrischen Verschaltung bei einer Zellenanordnung in zwei Richtungen ist in Fig. 5 beispielhaft dargestellt. Andere Anordnungen und Verschaltungen sind ebenfalls möglich. So können gemischte Serien-/Parallelverschaltungen verwendet werden. Beispielsweise sind dann jeweils 4 Zellen in Reihe verschaltet und diese Anordnungen werden dann durch Aufbringen leitfähiger Schichten parallel verschaltet, so daß redundant arbeitende Stromversorgungen zur Verfügung stehen, die auch nach Ausfall einer Einzelzelle weiterhin bei voller Spannung arbeitsfähig bleiben.

Die Fig. 6 bis 9 zeigen nun beispielhaft, wie die erfindungsgemäße Brennstoffzelle einfach durch Verkapselung in ein Kunststoffgehäuse 17, 18, 19 einbringbar ist. Fig. 6a zeigt hier ein Beispiel in der Seitenansicht, Fig. 6b in der Frontansicht. Die integrierte Brennstoffzelle 22 wird dabei in ein nicht leitendes Kunststoffgehäuse 17 gasdicht eingeschweißt oder eingegossen, wobei auf beiden Seiten der Zelle Öffnungen 23, 24 für die Brennstoffversorgung vorgesehen sind. Die elektrischen Anschlüsse 25, 26 der Zelle sind ebenfalls umgossen und werden als Metallkontakt nach außen geführt.

Fig. 7a und 7b zeigen eine weitere Variante, für eine vorteilhafte Gasversorgung mehrerer integrierter Brennstoffzellensysteme. Auch hier wird die integrierte Brennstoffzelle 22 gasdicht in ein nichtleitendes Kunststoffgehäuse 18 einschweißt/eingegossen, wobei aber durch die gesamte Zelle laufende Kanäle 27—30 zur Brennstoff Zufuhr und -abfuhr vorhanden sind. Am Beispiel einer Wasserstoff-Sauerstoff-Zelle wäre also ein Wasserstoffzufuhrkanal 27 vorhanden, der mit der einen Seite der integrierten Brennstoffzelle 22 verbunden ist, sowie ein Sauerstoffzufuhrkanal 30, der mit der anderen Seite der integrierten Brennstoffzelle verbunden ist. Eventuelle Inertgase können durch die Abfuhrkanäle 28 bzw. 29 für jede Seite der integrierten Brennstoffzelle abgeführt werden. Die elektrischen Anschlüsse der Zelle 25, 26 sind ebenfalls umgossen und werden als Metallkontakte nach außen geführt. In dieser Anordnung können eine Vielzahl dieser gekapselten Zellen über Dichtungen hintereinander angeordnet werden, wobei die Kanäle eine zentrale Brennstoffversorgung für alle Zellen bedeuten.

Die Kapselungstechnik ermöglicht aber ebenfalls den Einbau mehrerer integrierter Brennstoffzellensysteme in ein Kunststoffgehäuse 19 wie in Fig. 8 dargestellt.

Sollte eine Kühlung der Zellen notwendig werden, ist dies z. B. durch Aufbringen von Kühlkörpern möglich.

So können metallische Kühlkörper, beispielsweise aus Aluminium, auf die Zelle aufgeklebt werden. Auch eine Wasserkühlung ist möglich (Fig. 9), wobei dann zusätzlich zu den Brennstoffversorgungskanälen 27—30 ein Kanal für die Wasserzufuhr 31 und ein Kanal für die Wasserabfuhr 32 in das Gehäuse 33 integriert werden. Vorder- und Rückseite des Gehäuses enthalten entsprechende großflächige Vertiefungen 34, wobei dann beim Zusammenbau mehrerer Module z. B. durch Verkleben, Verschweißen oder über Dichtungen und Druck die eigentlichen Kühlstrukturen entstehen.

Soll nur ein einziges Modul gekühlt werden, sind die

oben beschriebenen Vertiefungen 34 als Hohlräume in das Gehäuse zu integrieren.

Es ist in einer weiteren Variante möglich, wobei der gasdurchlässige Tragkörper, durch den das Brenngas anströmt, als Wärmetauscher dient, was bedeutet, daß die Kühlmittelkanäle durch diesen Tragkörper verlaufen.

Die Kunststoffgehäuse 17, 18, 19 und 33 sind bevorzugt aus einem flexiblen Material gebildet. Dabei werden die Gehäusewände und die Brennstoffzellen 22 in einem Abstand gehalten, so daß die Gaszufuhr zur Brennstoffzelle 22 ohne Störungen erfolgen kann. Dabei können bei den Beispielen nach den Fig. 6a, 7a, 7b, 8 und 9 dort nicht dargestellte Abstandshalter aus nicht leitendem Material eingesetzt werden.

Fig. 10 zeigt das Aufbauschema eines Brennstoffzellen-Wickelmoduls, das auf der beschriebenen, flexiblen Brennstoffzellenfolie basiert, im Querschnitt, der besonders vorteilhaft ausgebildet und auf kleinem Raum einsetzbar ist.

Der Aufbau besteht zunächst aus der Brennstoffzellenfolie, die wiederum in der hier gezeichneten Variante aus dem porösen Tragkörper 40, den beidseitigen Elektroden 41, dem polymeren Festelektrolyten 42, den elektronisch leitfähigen Bezirken 43 sowie den Isolationsbezirken 44 besteht. Diese Brennstoffzellenfolie ist zusammen mit einer nicht leitfähigen und gasundurchlässigen Folie 45 aufgewickelt, so daß zwei voneinander getrennte Gasräume — 46 und 47 — entstehen. In diesen Gasräumen werden die chemischen Energieträger für die Brennstoffzellenfolie zugeführt, im Falle der H_2/O_2 bzw. H_2 /Luft-Brennstoffzelle sind dies beispielsweise im Gasraum 46 Wasserstoff und im Gasraum 47 Luft.

Damit erhalten die beidseitig auf den Polymerelektrolytbereichen aufgetragenen Elektroden 41 die für die Oxidations- und Reduktionsvorgänge der Brennstoffzelle benötigten Energieträger zugeführt. Damit diese Brennstoffzufuhr möglich ist, müssen sich zwischen der Brennstoffzellenfolie und der nicht leitenden Trennfolie 45 Zwischenräume befinden, die beispielsweise durch Abstandshalter 48 erzeugt werden. Solche Abstandshalter können praktisch durch Polymernetze erzeugt werden, die in dem Modul mit aufgewickelt werden und freies Volumen für einen Gasfluß erzeugen. Eine andere Möglichkeit besteht darin, daß keine Abstandshalter verwendet werden, sondern daß sich in der Trennfolie 45 auf beiden Seiten kleine Kanäle befinden, durch die das Gas an die Elektroden strömen kann.

Die Abstandshalter 48 können aber auch für die Kühlung eingesetzt werden und durch eine rohrförmige bzw. schlauchförmige Ausbildung kann Kühlmittel geleitet werden. Die in der Darstellung nicht erkennbaren Stirnflächen, des besonderen vorteilhaften Wickelmoduls, werden gasdicht mit deckelförmigen Verschlüssen abgeschlossen, die aus einem nicht leitenden Material bestehen.

Fig. 11 zeigt eine weitere, universelle und günstige Möglichkeit zur Ausgestaltung der Erfindung. Hierbei werden zunächst 3 Folien benötigt und übereinandergelagt. Eine gasundurchlässige, nicht leitende Folie 50, eine erfindungsgemäße Brennstoffzellenfolie sowie eine weitere gasundurchlässige, nicht leitende Folie 52. Eine derartige Kombination besitzt sowohl auf der Ober- als auch auf der Unterseite eine gasundurchlässige Folie und ist deshalb auf beiden Seiten gasdicht. Sie muß also nicht wie in Fig. 10 vollständig in sich aufgewickelt sein, sondern kann auf beliebige Rundungen oder Körper aufgewickelt werden.

Die zwei benötigten Gasräume befinden sich zwischen Folie 50 und 51 und zwischen Folie 51 und 52 und können wie bereits beschrieben, durch Einfügen von porösen Folien oder Netzen zwischen Folie 50 und 51 einerseits sowie Folie 51 und 52 andererseits erzeugt werden.

Die in Fig. 11 gezeigte Anordnung wird dann aufgewickelt, beispielsweise auf einen Körper 53, wie in Fig. 12 gezeigt. Die Gaszufuhr kann auf unterschiedliche Art erfolgen:

Zum einen können die Seiten A und D (Fig. 11) jeweils zwischen den Folien 50, 51 und 52 gasdicht abgedichtet werden durch Verkleben, Verschweißen oder durch Einfügen von Dichtungsmaterialstreifen zwischen die Folienenden. Zusätzlich wird auf der Seite B der Zwischenraum zwischen Folie 50 und 51 abgedichtet und auf der Seite C der Zwischenraum zwischen der Folie 51 und 52. Nach dem Aufwickeln erfolgt die Gaszufuhr jeweils an den Seiten der Rolle, wobei beispielsweise Wasserstoff auf der einen (aufgewickelte Seite B), und Sauerstoff auf der anderen Seite der Rolle (aufgewickelte Seite C) zugeführt wird.

Zum anderen können die Seiten B, C und D (Fig. 11) jeweils zwischen den Folien 50, 51 und 52 gasdicht abgedichtet werden durch Verkleben, Verschweißen oder durch Einfügen von Dichtungsmaterialstreifen. Die Gaszufuhr erfolgt dann beispielsweise für Wasserstoff auf der Seite A zwischen den Folien 50 und 51 und für Sauerstoff zwischen den Folien 51 und 52.

In beiden Fällen können Gasleitstrukturen für eine optimale Zufuhr der Gase an die Elektroden sorgen. Die Gasleitstrukturen können beispielsweise Kanäle sein, die in die undurchlässigen Folien 50 und 52 integriert sind.

Als Materialien für die Folien kommen bevorzugt Materialien in Betracht, die als flexible Folie herstellbar sind und den Bedingungen in der Brennstoffzelle standhalten können, d. h. sauerstoffresistent, wasserstoffresistent und hydrolysestabil sind. Beispielsweise sind Folien aus Polysulfonen oder perfluorierten Materialien einsetzbar.

Patentansprüche

1. Elektrochemisches Festelektrolyt-Zellsystem, bestehend aus einem flächigen gasdurchlässigen nichtleitenden und flexiblen Tragkörper (1) aus Polymermaterial, bei dem auf einer Oberfläche (2) mindestens ein Zellbereich (3, 4, 5), bestehend aus einer ersten porösen, elektrisch leitfähigen flexiblen Elektrodenschicht (7), einer protonenleitenden, flexiblen Membranschicht (8, 9, 10) und einer zweiten porösen, flexiblen, elektronisch leitfähigen Elektrodenschicht (11) übereinander, mittels Schichttechnik, aufgebracht ist.
2. Elektrochemisches Festelektrolyt-Zellsystem nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß 2—1 000 000 Zellbereiche (3, 4, 5) auf dem Tragkörper angeordnet und elektrisch verschaltet sind.
3. Elektrochemisches Festelektrolyt-Zellsystem nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß 2—10 000 Zellbereiche (3, 4, 5) hintereinander in Reihe verschaltet sind.
4. Elektrochemisches Festelektrolyt-Zellsystem nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß 2—10 000 Reihen parallel verschaltet sind.
5. Elektrochemisches Festelektrolyt-Zellsystem nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß die elektrische Ver-

schaltung über einen, die protonenleitenden Membranschichten (8, 9, 10) von benachbarten Zellbereichen (3, 4, 5) trennenden, nicht protonenleitenden, elektrischen Kontakt (12, 13, 14) erfolgt, wobei dieser eine Elektrodenfläche (7) eines ersten Zellbereichs (3, 4, 5) mit der gegenüberliegenden Elektrodenfläche (11) des nächsten Zellbereichs verbindet.

6. Elektrochemisches Festelektrolyt-Zellsystem nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß der elektrische Kontakt (12, 13, 14) im Bereich der protonenleitenden Membranschichten nicht porös und nicht katalytisch aktiv ist.

7. Elektrochemisches Festelektrolyt-Zellsystem nach Anspruch 5 oder 6, dadurch gekennzeichnet, daß zwischen dem elektrischen Kontakt (12, 13, 14) und der benachbarten, protonenleitenden Membranschicht (8, 9, 10) zusätzlich eine, mittels Schichttechnik aufgebrachte, isolierende Schicht (15, 16) angeordnet ist.

8. Elektrochemisches Festelektrolyt-Zellsystem nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß auf der elektrisch leitfähigen Elektrodenschicht (7, 11) elektronisch leitfähiges Material, z. B. in Form von Streifen oder Gittern, aufgebracht ist.

9. Elektrochemisches Festelektrolyt-Zellsystem nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß der Tragkörper (1) eine nicht leitfähige, gasdurchlässige, flächige Membran ist, die symmetrisch, asymmetrisch oder als Composit-Membran aufgebaut sein kann.

10. Elektrochemisches Festelektrolyt-Zellsystem nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß das Material des Tragkörpers (1) aus polymeren Materialien wie Polysulfonen, oder aus derartigen trägergestützten Materialien besteht.

11. Elektrochemisches Festelektrolyt-Zellsystem nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß das Material für die Elektrodenschichten (7, 11) ausgewählt ist aus Elementen der VIII. Nebengruppe, sowie deren Legierungen, Oxide, Mischoxide, oder Mischungen davon oder aus Mischungen oder Verbünden der genannten Materialien mit Kohlenstoff.

12. Elektrochemisches Festelektrolyt-Zellsystem nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 11, dadurch gekennzeichnet, daß das Material für die protonenleitende Membranschicht (8, 9, 10) ausgewählt ist aus organischen polymeren Ionenleitern oder flexiblen organisch-anorganischen Polymeren.

13. Elektrochemisches Festelektrolyt-Zellsystem nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 12, dadurch gekennzeichnet, daß das Material für den elektrischen Kontakt zur Verschaltung der Zellbereiche im Bereich der Membranschicht, Metalle wie Titan oder leitfähiger Kohlenstoff oder elektronisch leitfähige Polymere sind.

14. Elektrochemisches Festelektrolyt-Zellsystem nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 13, dadurch gekennzeichnet, daß die isolierende Schicht (15, 16) ein organisch nicht leitfähiges Polymer wie Polysulfone oder plasmapolymerisierte Polymerschichten ist.

15. Elektrochemisches Festelektrolyt-Zellsystem nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 14, dadurch gekennzeichnet, daß 1—10 000 000 Zellsysteme in ein nicht leitendes Kunststoffgehäuse (17,

18, 19) eingegossen oder eingeschweißt sind, wobei die Anschlüsse der Zelle mitumgossen und als Kontakt nach außen geführt sind.

16. Elektrochemisches Festelektrolyt-Zellsystem nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, daß 1—2000 verkapselte Zellsysteme mittels Dichtungen hintereinander angeordnet und zentrale Stoffzufuhr- bzw. -abfuhrkanäle besitzen.

17. Elektrochemisches Festelektrolyt-Zellsystem nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 16, dadurch gekennzeichnet, daß eine aus Tragkörper (40), den Elektroden (41), Festelektrolyt (42) bestehende flexible Folie gemeinsam mit einer nicht leitenden, gasundurchlässigen flexiblen Folie (45), in einem Abstand einen Gasraum (46) ausbildend, angeordnet und gewickelt sind, so daß ein zweiter Gasraum (47) ausgebildet ist und die Stirnflächen des wickelmodulförmigen Systems verschlossen sind.

18. Elektrochemisches Festelektrolyt-Zellsystem nach Anspruch 17, dadurch gekennzeichnet, daß in den beiden Gasräumen (46) und (47) Abstandhalter (48) angeordnet sind.

19. Elektrochemisches Festelektrolyt-Zellsystem nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 16, dadurch gekennzeichnet, daß das Zellsystem als flexible Folie (51) ausgebildet, die beidseitig von nicht leitenden Trennfolien (50) und (52) umgeben ist und die Seiten (A), (B), (C) und (D) so miteinander verbunden sind, daß zwei Gasräume beidseitig der flexiblen Folie (51) mit getrennter Gaszufuhr ausgebildet sind.

20. Elektrochemisches Festelektrolyt-Zellsystem nach Anspruch 19, dadurch gekennzeichnet, daß die Folien (50, 51, 52) um einen Körper (53) gewickelt sind.

21. Verfahren zur Herstellung eines elektrochemischen Festelektrolyt-Zellsystems nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 20, dadurch gekennzeichnet, daß auf dem Tragkörper nacheinander eine erste elektrisch leitfähige Elektrodenschicht, eine protonenleitende Membranschicht und eine zweite, poröse, elektronisch leitfähige Membranschicht, mittels an und für sich bekannten Verfahren der Filmtechnik abgeschieden werden.

22. Verfahren nach Anspruch 21, dadurch gekennzeichnet, daß die Schichten mittels PVD, CVD, thermisch- oder plasmaunterstützter Zersetzung metallorganischer Verbindung, galvanischer Methoden oder Pressverfahren hergestellt werden.

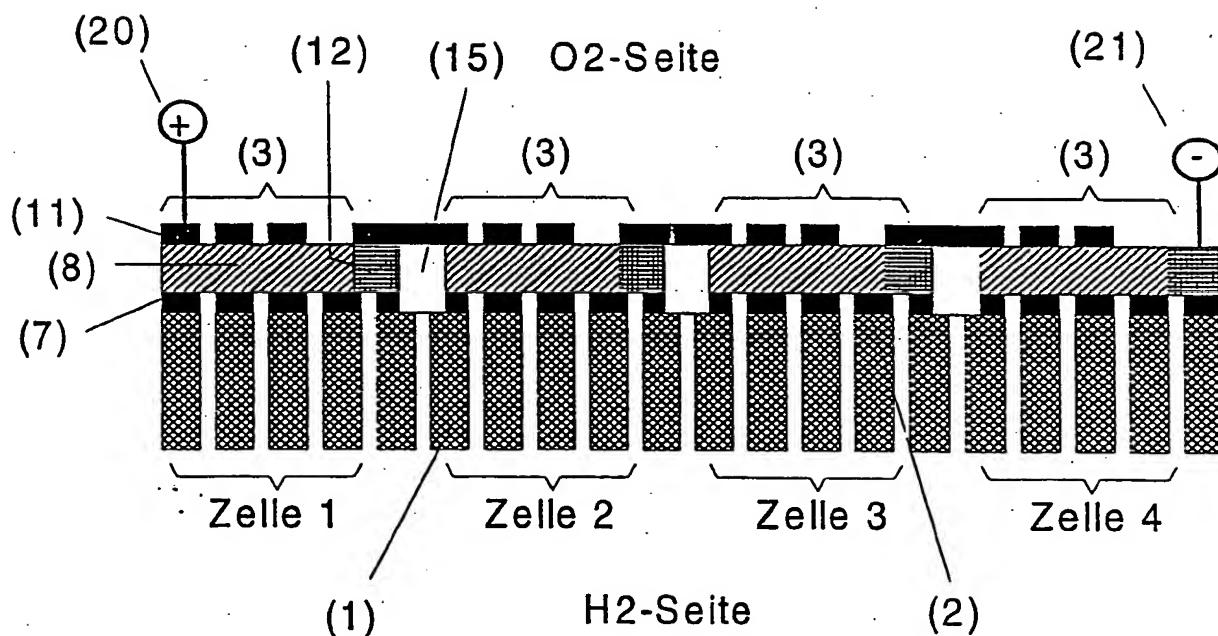
23. Verfahren nach Anspruch 21 oder 22, dadurch gekennzeichnet, daß die Erzeugung definierter geometrischer Strukturen der aufzubringenden Schichten mittels Masken, die auf das Substrat aufgelegt werden, oder mittels geeigneter Photolacke erfolgt.

24. Verwendung des elektrochemischen Festelektrolyt-Zellsystems nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 20

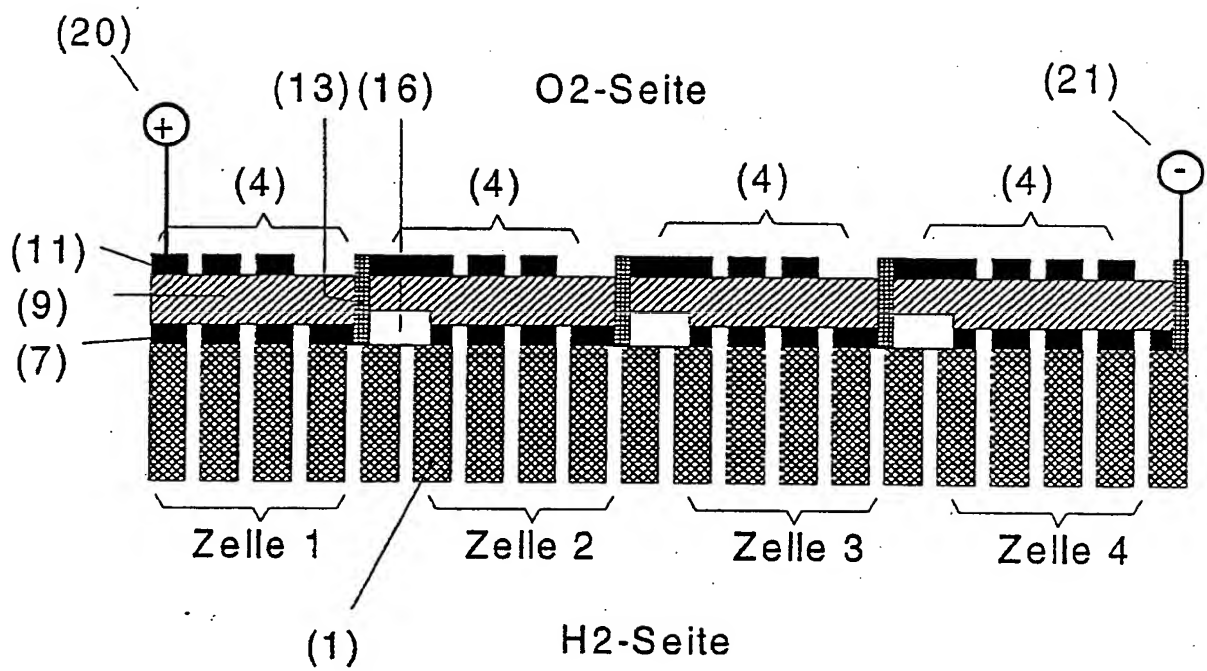
als Elektrolysesystem, welches Wasser in Wasserstoff und Sauerstoff spaltet.

25. Verwendung des elektrochemischen Festelektrolyt-Zellsystems nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 20, als Brennstoffzelle, welche Wasserstoff oder Methanol verstromt.

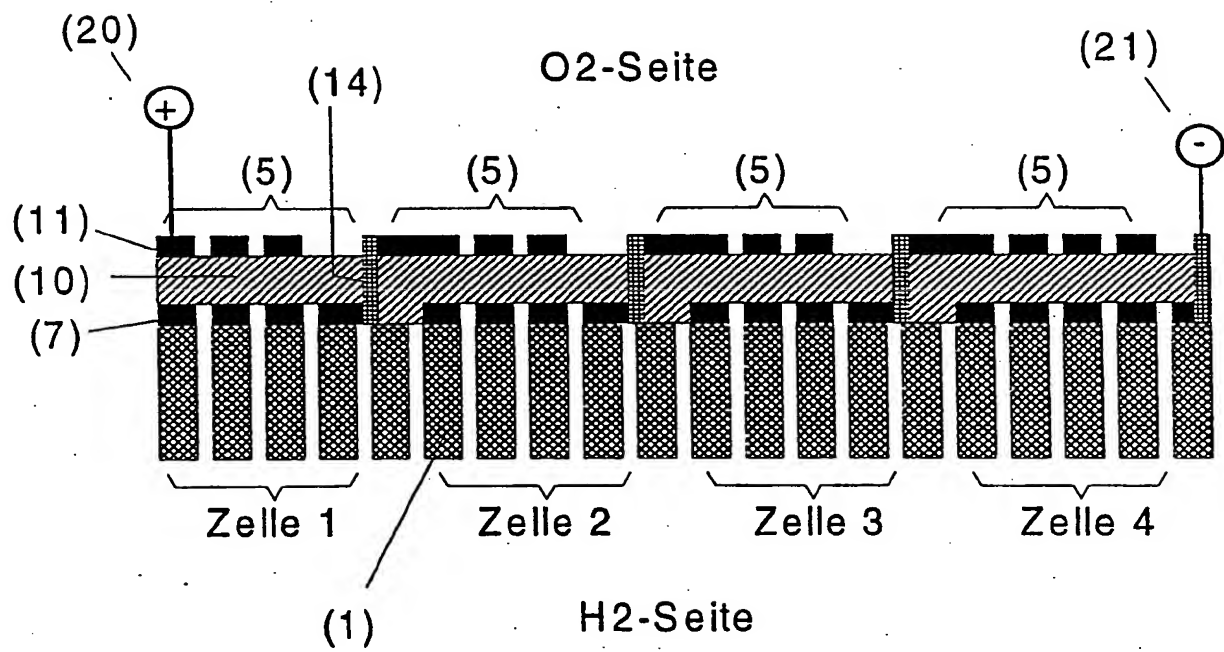
Figur 1



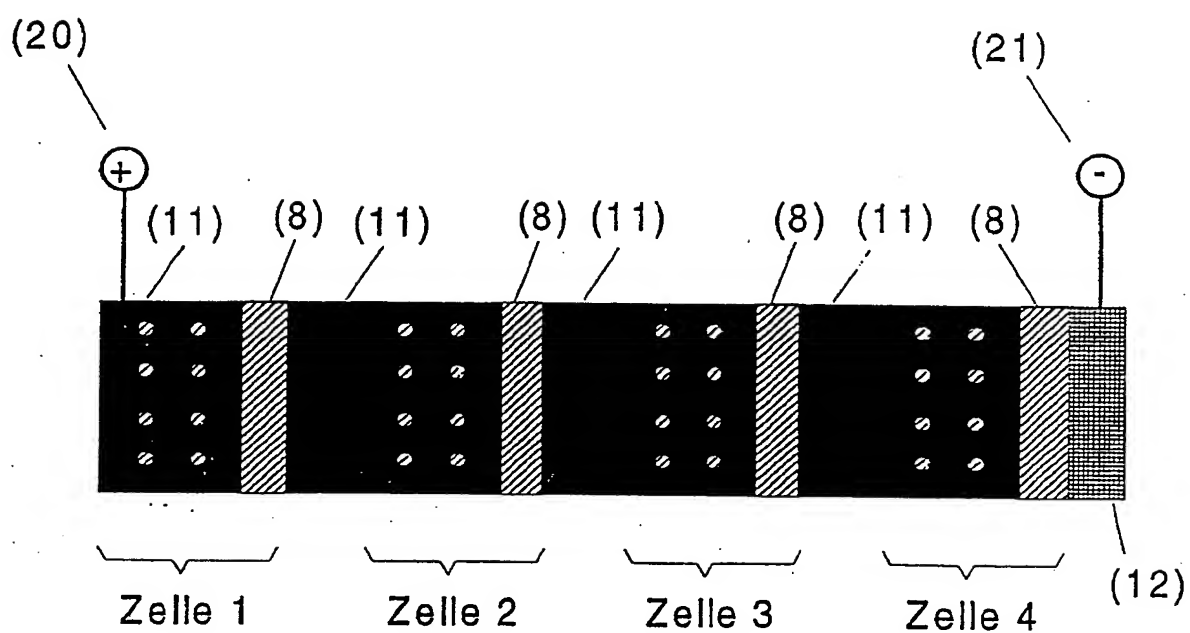
Figur 2



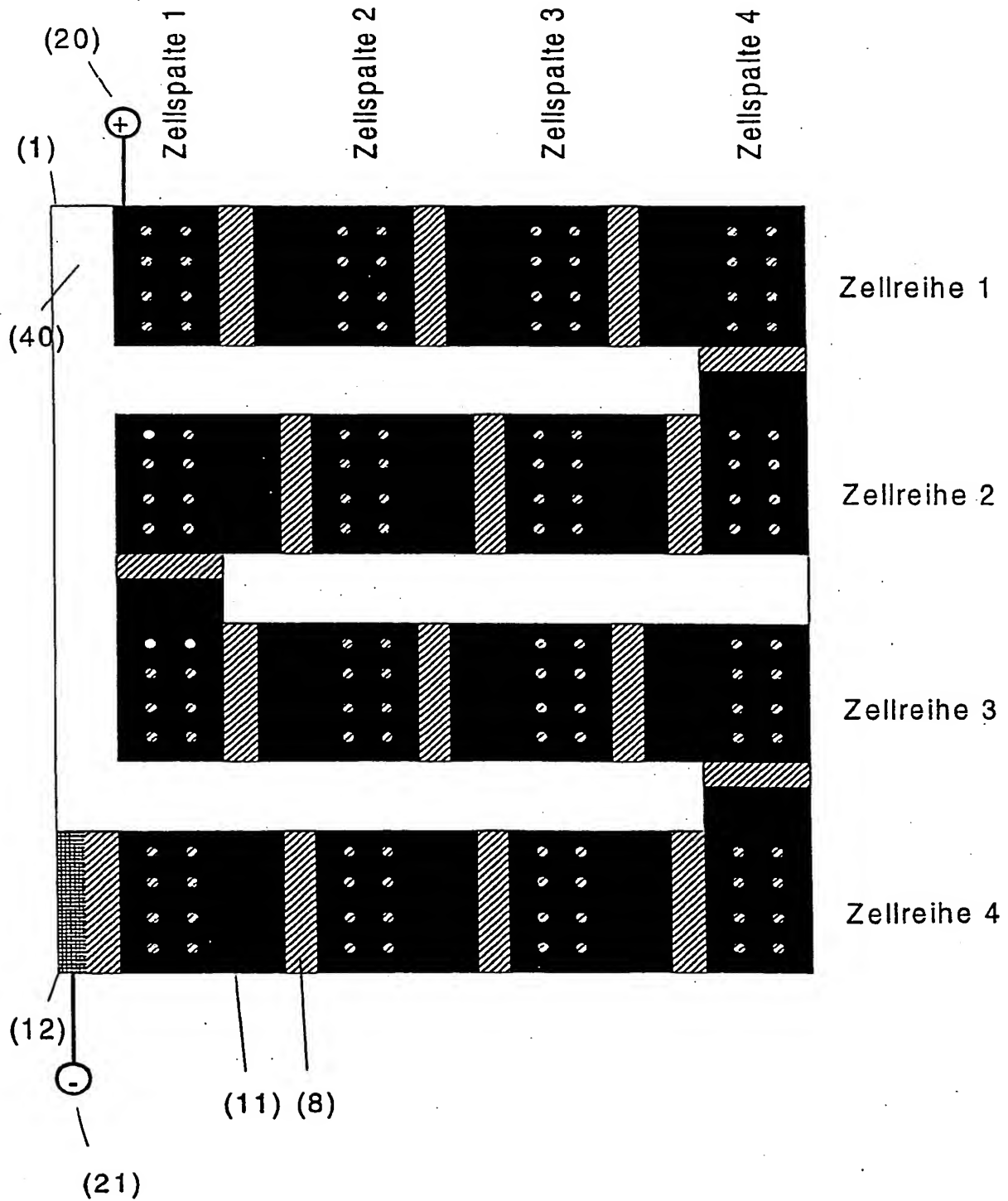
Figur 3



Figur 4

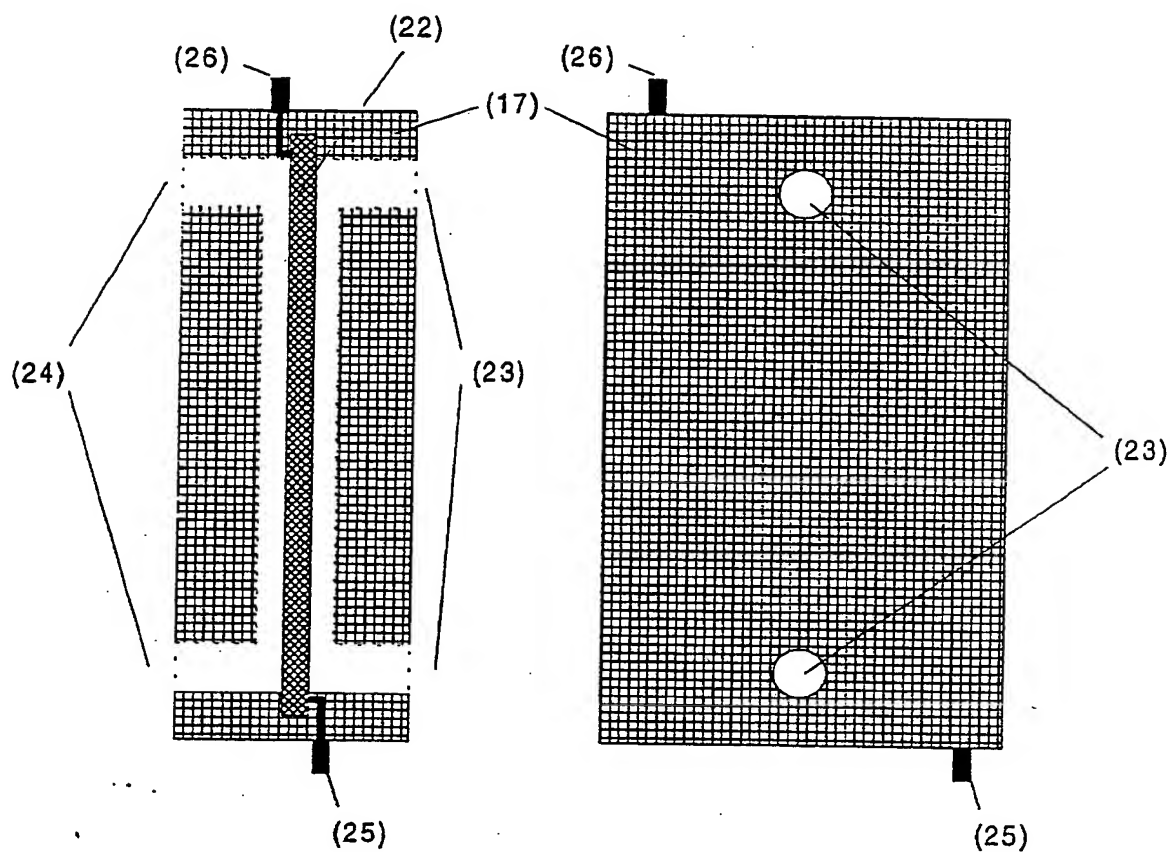


Figur 5



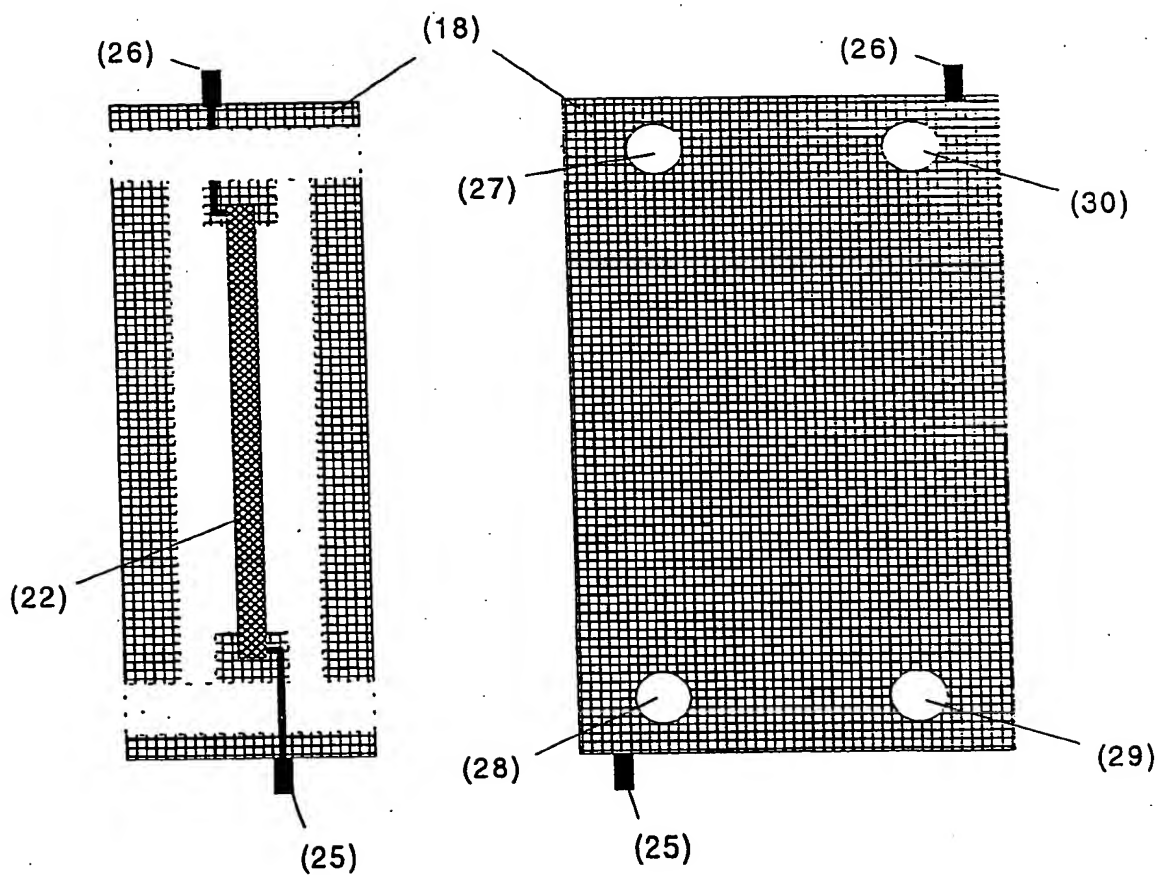
Figur 6a

Figur 6b

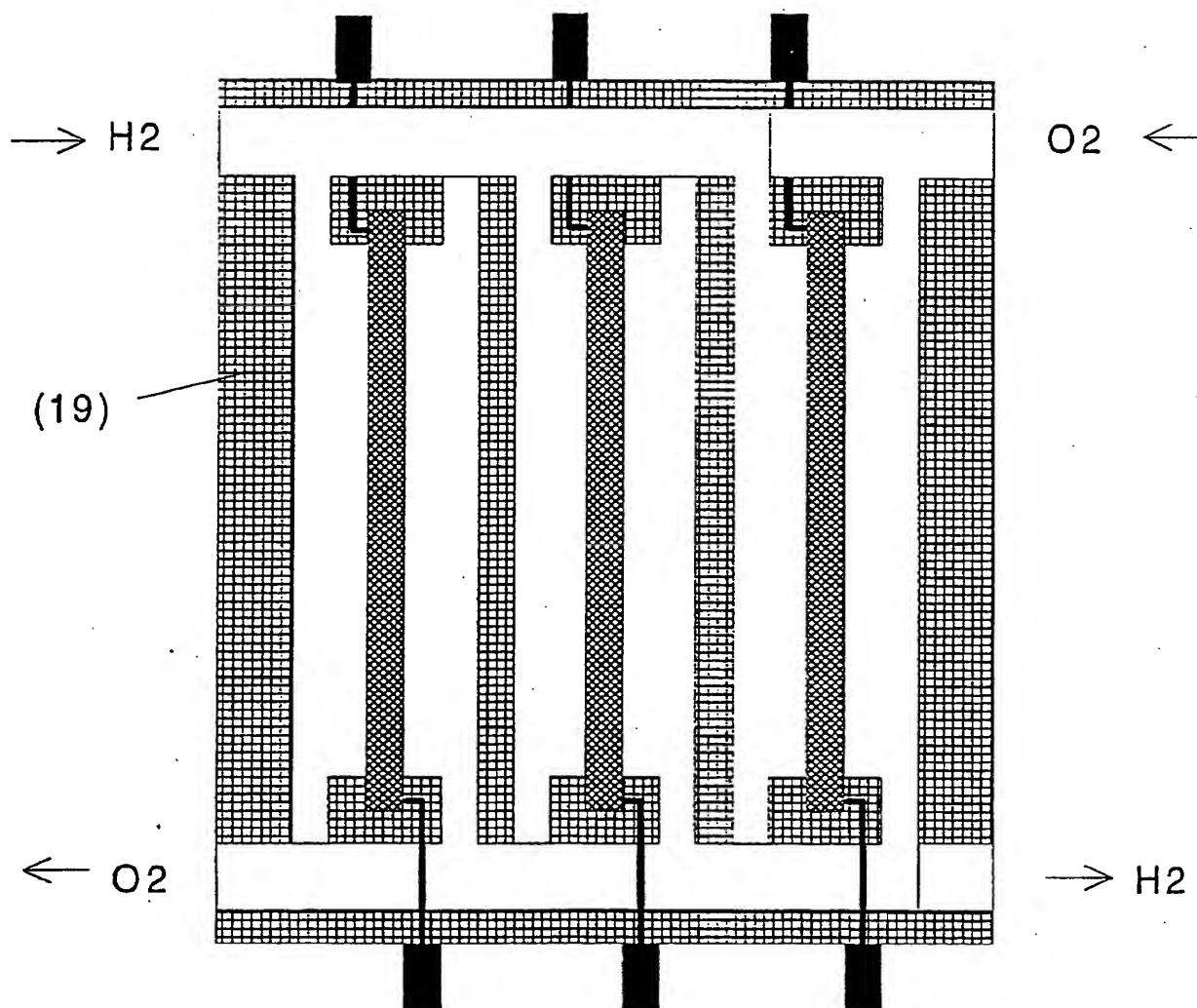


Figur 7a

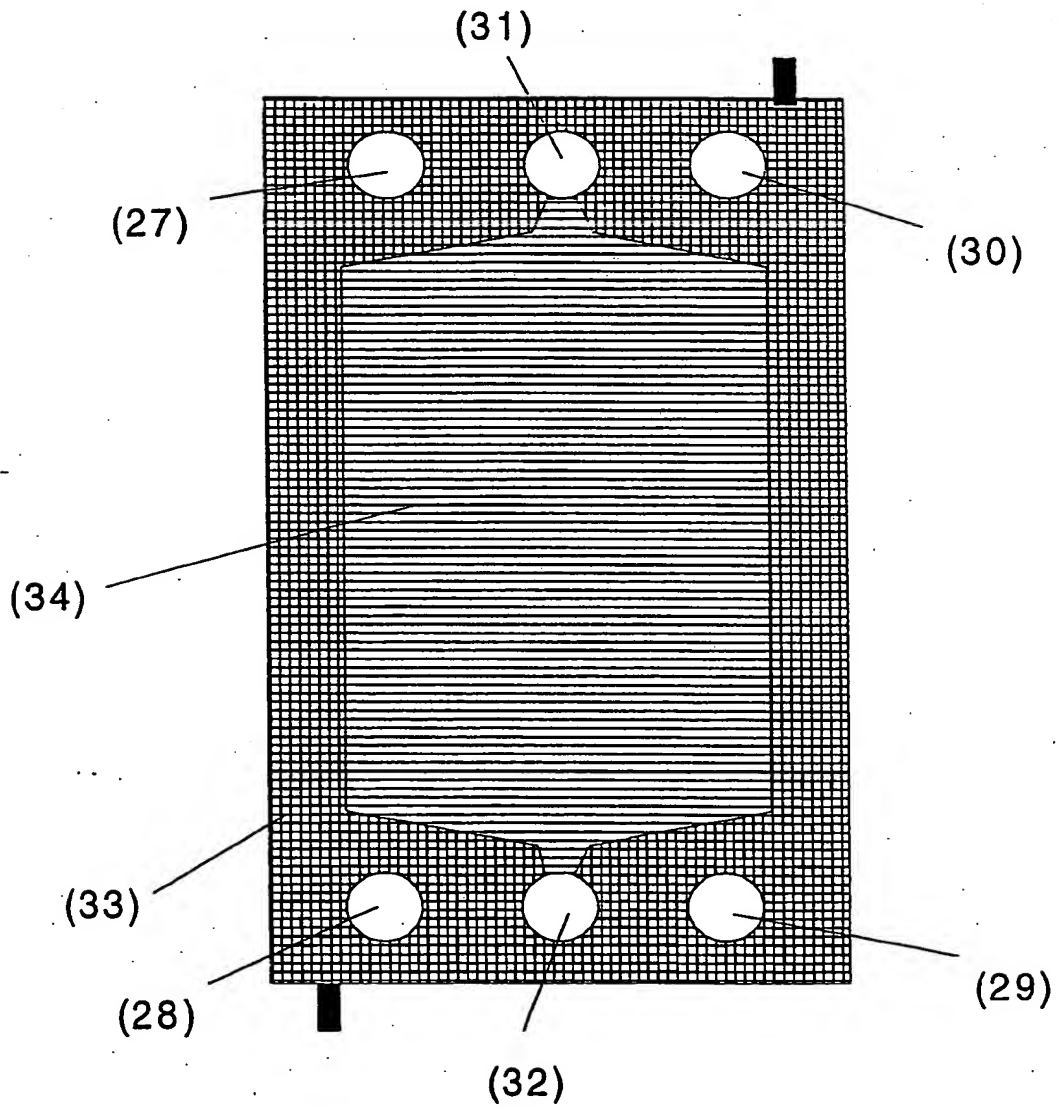
Figur 7b

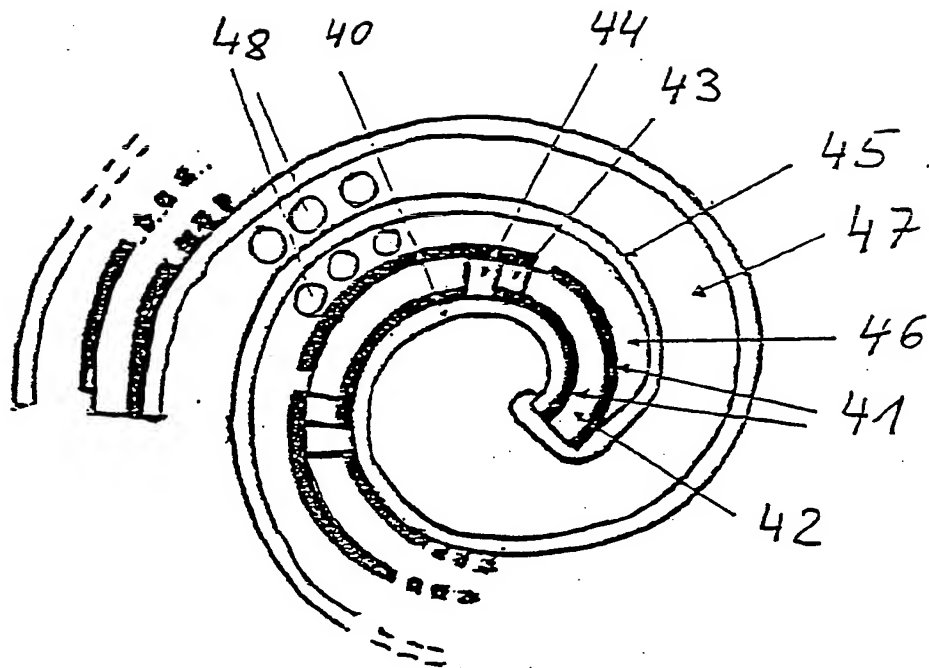


Figur 8

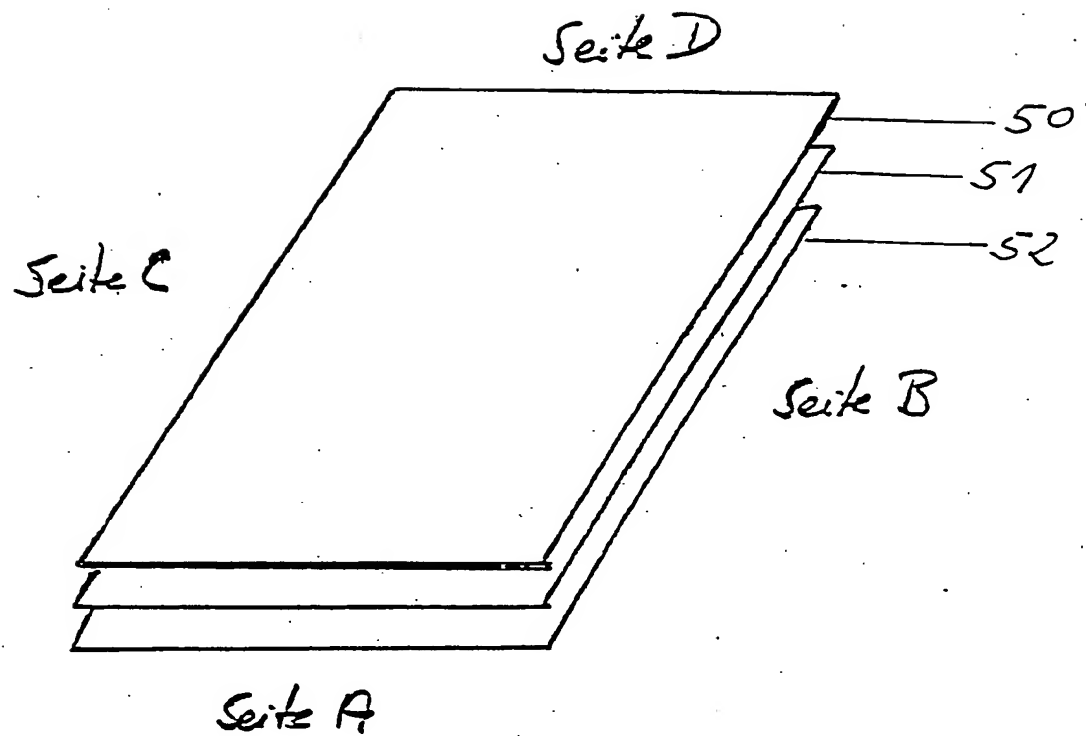


Figur 9





Figur 10



Figur 11

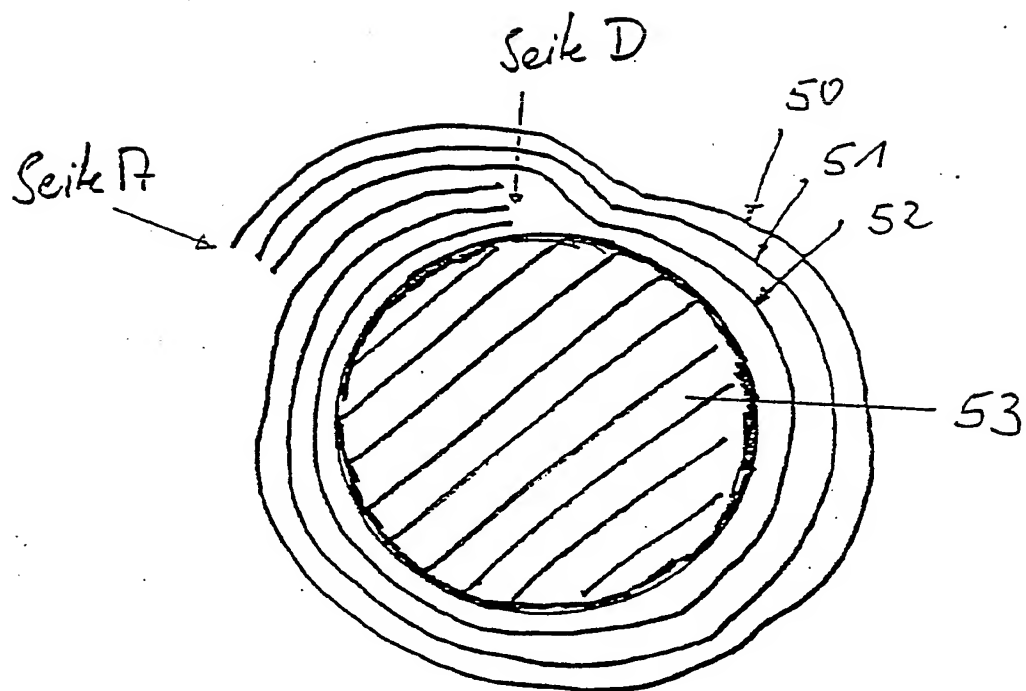


Figure 12

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☒ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.

THIS PAGE BLANK (USPTO)